



(11) EP 1 187 241 B1

(12)

## **EUROPEAN PATENT SPECIFICATION**

(45) Date of publication and mention of the grant of the patent: 28.05.2008 Bulletin 2008/22 (51) Int Cl.: H01M 8/04 (2008.01)

H01M 8/06 (2006.01)

(21) Application number: 01121025.9

(22) Date of filing: 31.08.2001

#### (54) Fuel cell power plant

Brennstoffzellenkraftanlage
Unité de production d'énergie à pile à combustible

(84) Designated Contracting States: **DE FR GB** 

(30) Priority: 11.09.2000 JP 2000275190

(43) Date of publication of application: 13.03.2002 Bulletin 2002/11

(73) Proprietor: NISSAN MOTOR CO., LTD. Yokohama-shi, Kanagawa (JP)

(72) Inventors:

 lio, Masatoshi Kanazawa-ku, Yokohama-shi, Kanagawa (JP)

 Iwasaki, Yasukazu Yokosuka-shi, Kanagawa (JP) (74) Representative: Grünecker, Kinkeldey, Stockmair & Schwanhäusser Anwaltssozietät Leopoldstrasse 4 80802 München (DE)

(56) References cited:

- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 09, 30 July 1999 (1999-07-30) & JP 11 116202 A (ISHIKAWAJIMA HARIMA HEAVY IND CO LTD), 27 April 1999 (1999-04-27)
- PATENTABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 501 (E-1429), 9 September 1993 (1993-09-09) & JP 05 129029 A (MITSUBISHI HEAVY IND LTD), 25 May 1993 (1993-05-25)
- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 03, 29 March 1996 (1996-03-29) & JP 07 302609 A (TOSHIBA CORP), 14 November 1995 (1995-11-14)

P 1 187 241 B1

Note: Within nine months of the publication of the mention of the grant of the European patent in the European Patent Bulletin, any person may give notice to the European Patent Office of opposition to that patent, in accordance with the Implementing Regulations. Notice of opposition shall not be deemed to have been filed until the opposition fee has been paid. (Art. 99(1) European Patent Convention).

#### Description

#### FIELD OF THE INVENTION

[0001] This invention relates to a fuel cell power plant using reformate gas processed by a reformer.

#### BACKGROUND OF THE INVENTION

[0002] Tokkai Hei 5-129029 published by the Japanese Patent Office in 1993 and Tokkai Hei 7-302609 published by the Japanese Patent Office in 1995 disclose a fuel cell power plant provided with a hydrogen recirculation passage. A reformate gas processed by the reformer is transformed into a hydrogen-rich gas as a result of permeating a membrane hydrogen separator and thereafter is supplied to an anode chamber of a fuel cell stack.

[0003] The anode effluent from the anode chamber is recirculated to the post-separation side of the membrane hydrogen separator through a hydrogen recirculation passage and is mixed with the hydrogen-rich gas which has permeated through the membrane hydrogen separator. Thereafter this gas is re-supplied to the anode chamber.

#### SUMMARY OF THE INVENTION

[0004] When a steam reformer is used as the reformer and has an operating pressure of 10.0 atm, the partial pressure exerted on the post-separation side of the membrane hydrogen separator by hydrogen takes a value of 1.93 atm when the total pressure on the post-separation side of the membrane hydrogen separator is 2.5 atm.

[0005] When a preferential catalytic oxidation (PROX) reactor or an autothermal (ATR) reactor which promote simultaneous preferential oxidation and steam reforming is used as the reformer, the operating pressure of the reformer is approximately 2.5 atm. In this case, the hydrogen partial pressure on the post-separation side of the membrane hydrogen separator is 1.95 atm, in contrast to the hydrogen partial pressure of 1.98 atm on the pre-separation side of the membrane hydrogen separator.

[0006] The hydrogen partial pressure on the pre-separation side of the membrane hydrogen separator must be increased in order to maintain a hydrogen permeation amount. Thus the air pressure of air entering the reformer must also be increased in order to increase the operating pressure. This has the result of a larger load being applied to a compressor which supplies air to the reformer and thus reduces the efficiency of the fuel cell system.

[0007] In this regard, Tokkai Hei 11-116202 published by the Japanese Patent Office in 1999 discloses a technique of supplying nitrogen or steam as a sweep gas to the post-separation side of the membrane hydrogen separator. The supply of the sweep gas causes a reduction in the hydrogen partial pressure on the post-separation side of the membrane hydrogen separator. Thus the difference in hydrogen partial pressures on the pre-separation side and post-separation side of the membrane hydrogen separator is increased and the hydrogen permeation amount through the membrane hydrogen separator is also increased.

[0008] However the efficiency of this type of fuel cell is reduced due to the energy used in generating the sweep gas. Furthermore when this fuel cell power plant is used to power a vehicle, limited space results in problems in disposing additional equipment such as a tank or a sweep gas generating device.

[0009] It is therefore an object of this invention to reduce the hydrogen partial pressure on the post-separation side of a membrane hydrogen separator through use of a sweep gas while minimizing additional equipment at the same time. [0010] In order to achieve the above object, this invention provides a fuel cell power plant comprising a fuel cell stack comprising an anode chamber and a cathode chamber, a membrane hydrogen separator having a pre-separation side facing a reformate gas and a post-separation side, a hydrogen supply passage which supplies hydrogen at the post-separation side of the membrane hydrogen separator to the anode chamber, an anode effluent recirculation passage which recirculates anode effluent discharged from the anode chamber to the post-separation side of the membrane hydrogen separator, an intake valve which introduces a gas other than hydrogen to one of the anode effluent recirculation passage and the hydrogen supply passage; and a discharge valve which discharges gas from the anode effluent recirculation passage. The fuel cell stack generates power by a reaction of hydrogen supplied to the anode chamber and air supplied to the cathode chamber. The membrane hydrogen separator allows hydrogen in the reformate gas to permeate from the pre-separation side to the post-separation side.

[0011] The details as well as other features and advantages of this invention are set forth in the remainder of the specification and are shown in the accompanying drawings.

#### BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

[0012] Fig. 1 is a schematic diagram of a fuel cell power plant for a vehicle according to this invention.

[0013] Fig. 2 is similar to Fig. 1, but showing a variation related to a reformer.

- [0014] Fig. 3 is a schematic diagram of a fuel cell power plant for a vehicle according to a second embodiment of this invention.
- [0015] Fig. 4 is a schematic diagram of a fuel cell power plant for a vehicle according to a third embodiment of this invention.
- [0016] Fig. 5 is a flowchart describing a control routine of the hydrogen partial pressure on a post-separation side of a membrane hydrogen separator according to a fourth embodiment of this invention.

## DESCRIPTION OF THE PREFERRED EMBODIMENTS

- [0017] Referring to Fig. 1 of the drawings, the fuel cell power plant for a vehicle according to this invention is provided with a fuel cell stack 2. The fuel cell stack 2 comprises polymer electrolyte fuel cells (PEFC) which are laminated in parallel. Each cell comprises an anode 2C, a cathode 2D, an anode chamber 2A facing the anode 2C, a cathode chamber 2B facing the cathode 2D and a solid polymer electrolyte 2E disposed between the anode 2C and the cathode 2D.
  - **[0018]** The fuel cell power plant is provided with a steam reformer 4 and a membrane hydrogen separator 11. The steam reformer 4 generates a reformate gas containing hydrogen from a liquid fuel such as alcohol or gasoline.
  - **[0019]** The membrane hydrogen separator 11 comprises a pre-separation side 11A and a post-separation side 11B. A hydrogen-rich gas is generated on the post-separation side 11B by permeating the reformate gas introduced on the pre-separation side 11A through a membrane of the membrane hydrogen separator 11.
  - [0020] The hydrogen-rich gas permeating to the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is supplied to the anode chamber 2A of the fuel cell stack 2 from a hydrogen supply passage 25. A cooler 12 which cools the hydrogen-rich gas and a humidifier 13 which humidifies the hydrogen-rich gas are provided in the hydrogen supply passage 25.
  - [0021] Pressurized air from a compressor 7 is supplied through a cooler 120 and a humidifier 130 to the cathode chamber 2B of the fuel cell stack 2.
  - [0022] The fuel cell stack 2 separates hydrogen from the anode chamber 2A into a proton and an electron (H+) with a catalyst-mediated oxidation reaction. The proton passes through the solid polymer electrolyte 2E in the fuel cell stack 2 and reaches the cathode 2D. The electron passes from an electrode through a load circuit such as a motor and reaches the cathode 2D.
    - [0023] Protons and electrons reaching the cathode 2D react with oxygen in the cathode chamber 2D to produce water.
      [0024] These reactions result in hydrogen-containing anode effluent being discharged from the anode chamber 2A and oxygen-containing cathode effluent being discharged from the cathode chamber 2B.
    - [0025] Anode effluent is recirculated to the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 by an anode effluent recirculation passage 8. A water separator 14 and a recirculation pump 9 are provided in the anode effluent recirculation passage 8. The water separator 14 removes water from the anode effluent and maintains the moisture concentration in the anode effluent to the saturated state.
    - [0026] The anode effluent recirculation passage 8 recirculates a hydrogen-containing gas processed by the water separator 14 and pressurized by the recirculation pump 9 to the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11. The re-supplied gas is mixed with the hydrogen-rich gas generated by the membrane hydrogen separator 11 and is supplied again to the anode chamber 2A of the fuel cell stack 2.
- 40 [0027] The cathode effluent is supplied to a combustor 1 through a pressure control valve 41 after water is separated by a water separator 140.
  - [0028] The combustor 1 is provided in order to generate the heat required by a vaporizer 3 and the steam reformer 4. The combustor 1 generates heat by reacting gas containing hydrogen supplied from the anode effluent recirculation passage 8 through a discharge valve 60 and reformate gas generated by the steam reformer 4 with oxygen contained in the cathode effluent supplied through the pressure control valve 41.
  - [0029] A gaseous mixture of steam and liquid fuel such as alcohol or gasoline is supplied through the vaporizer to the steam reformer 4. The vaporizer 3 generates a gaseous mixture by vaporizing water from a water tank 6 and fuel from the fuel tank 5 with the high levels of heat created by combusted gas in the combustor 1. The gaseous mixture is supplied to the steam reformer 4. The steam reformer 4 performs a steam reformate using a catalyst and heat from the combustor 1 applied to the gaseous mixture in order to generate a reformate gas containing hydrogen (H<sub>2</sub>).
  - [0030] A discharge passage 61 which supplies a part of the hydrogen -containing gas to the combustor 1 is connected to the anode effluent recirculation passage 8 through the discharge valve 60. An air supply passage 20 is connected through an intake valve 30 to the anode effluent recirculation passage 8.
  - [0031] The hydrogen separation capability of the membrane hydrogen separator 11 increases as the difference between the hydrogen partial pressure on the pre-separation side 11A and the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B increases. In this fuel cell power plant, part of the pressurized air from the compressor 7 is supplied to the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 from the air supply passage 20 via the anode effluent recirculation passage 8. This air is supplied as a sweep gas in order to reduce the hydrogen partial pressure on

the post-separation side 11B.

[0032] The fuel cell power plant is provided with a controller 10 for controlling the hydrogen pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 through the operation of the intake valve 30 and discharge valve 60.

[0033] When the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 rises, the controller 10 opens the intake valve 30 and introduces air into the anode effluent recirculation passage 8. As a result, the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is reduced and the amount of hydrogen permeating from the pre-separation side 11A to the post-separation side 11B increases.

[0034] In order to maintain the amount of hydrogen supplied to the anode chamber 2A at a predetermined value, the amount of fuel supplied to the reformer 2A from the fuel tank 5 through the vaporizer 3 is reduced. Oxygen contained in the air supplied from the intake valve 30 to the anode effluent recirculation passage 8 creates steam as a result of exidation reactions in the anode chamber 2A.

[0035] However, the moisture content in the gas in the anode effluent recirculation passage 8 is maintained constant by the water separator 14 as described above, so the air supplied to the anode effluent recirculation passage 8 substantially provides nitrogen and carbon dioxide contained in the air to the gas in the anode effluent recirculation passage 8.

[0036] As a result, the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 is reduced.

[0037] Until the discharge valve 60 is open, nitrogen and carbon dioxide are recirculated in the hydrogen supply passage 25 and the anode effluent recirculation passage 8. The intake valve 30 is closed when the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 is lowered to a predetermined concentration.

[0038] On the other hand, when the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 is lower than the predetermined concentration, the hydrogen pressure is also lower than a predetermined pressure.

[0039] In this case, the discharge valve 60 is opened, and part of the gas in the anode effluent recirculation passage 8 is discharged to the combustor 1. This operation allows nitrogen and carbon dioxide contained in the gas to be discharged from the anode effluent recirculation passage 8. Although hydrogen is also discharged at this time, the concentration of hydrogen in the anode effluent recirculation passage 8 rises because hydrogen is continuously supplied from the membrane hydrogen separator 11.

[0040] The fuel cell power plant is provided with a hydrogen sensor 40, a pressure sensor 44 and a pressure sensor 45 to provide the controller 10 with informations required for the above control. The hydrogen sensor 40 detects the hydrogen concentration in the gas in the anode effluent recirculation passage 8. The pressure sensor 44 detects the absolute pressure *P2a* of the gas on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11. The pressure sensor 45 detects the absolute pressure P1a of the gas on the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11. The controller 10 operates the intake valve 30 and the discharge valve 60 based on detection signals from these sensors in order to maintain the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 at a target value.

[0041] The controller 10 comprises a microcomputer provided with a central processing unit (CPU), a read only memory (ROM), a random access memory (RAM) and an input/output interface (I/O interface), or plurality thereof.

[0042] A second embodiment of this invention will be described below with reference to Fig. 2.

[0043] In this embodiment, the reformate gas is produced using an autothermal reactor (ATR) 4A instead of the steam reformer 4.

[0044] The ATR 4A reforms the fuel by partial oxidation with a catalyst. For this purpose, air is supplied through a valve 141 from the compressor 7 to the ATR 4A. Other structure is the same as that described with respect to the first embodiment

[0045] The hydrogen partial pressure and the steam pressure at the point U, the point V and the point W in Fig. 1 in the first embodiment are shown in Table 1. The hydrogen partial pressure and the steam partial pressure at the point U, the point V and the point W in Fig. 2 in the second embodiment are shown in Table 2.

[0046]

Table 1(unit: atm)

 POINT U
 POINT V
 POINT W

 H2
 0.64
 6.32
 1.52

 H2O
 0.57
 1.39
 0.47

 Others
 1.29
 2.29
 0.51

[0047]

45

50

Table 2(unit: atm)

	POINT U	POINT V	POINT W
H <sub>2</sub>	0.64	1.98	1.52
H <sub>2</sub> O	0.57	0.27	0.47
Others	1.29	0.25	0.51

[0048] The conditions for calculation of the hydrogen partial pressure are the same as calculations using conventional techniques when a sweep gas is not used. In both the first embodiment which uses the steam reformer 4 and the second embodiment which uses an ATR 4A, the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 measured at the point U reduces from 1.93 to 0.64.

[0049] The amount of hydrogen permeating the membrane hydrogen separator 11 is proportional to the difference of the square root of the hydrogen partial pressure on the pre-separation side 11A (point V) and the square root of the hydrogen pressure on the post-separation side 11B (point U).

[0050] The amount of hydrogen permeating the membrane hydrogen separator 11 in the first embodiment is given by the following equation.

[0051]

## Hydrogen permeation amount according to 1st embodiment Hydrogen permeation amount without sweep gas

$$=\frac{\sqrt{6.32}-\sqrt{0.64}}{\sqrt{6.32}-\sqrt{1.93}}$$
$$=1.52$$

30

5

10

20

25

[0052] That is to say, this invention allows the hydrogen permeation amount to be increased by approximately 1.5 times when using the same membrane hydrogen separator 11. Therefore this allows the membrane hydrogen separator 11 to be downsized. When turning the fuel cell power plant ON or OFF, the membrane hydrogen separator 11 must be warmed or cooled. Furthermore it is necessary to remove hydrogen in the casing which houses the membrane hydrogen separator 11. The time required for these processes is shortened by downsizing the membrane hydrogen separator 11. [0053] In the first and the second embodiments above, air is introduced into the anode effluent recirculation passage 8 in order to reduce the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11. However, it is possible to reduce the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 by using a gas other than air, for example by using the combusted gases discharged from the vaporizer 3 or the cathode effluent from the cathode chamber 2B.

[0054] Next, a third embodiment of this invention will be described with reference to Fig. 3.

[0055] In this embodiment, a combusted gas supply passage 21 and valves 31 and 42 are provided in order to supply combusted gas from the combustor 1 introduced into the vaporizer 3 to the hydrogen supply passage 25 instead of the intake valve 30 in the first embodiment. The valve 31 is provided in the combusted gas supply passage 21 and the valve 42 is provided in a discharge passage 43 which discharges combusted gas from the vaporizer 3 into the atmosphere. The valves 31 and 42 are operated by the controller 10.

[0056] When the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 rises, the controller 10 closes the valve 42, opens the valve 31 and supplies combusted gas from the combustor 1 to the hydrogen supply passage 25. The combusted gas is recirculated to the hydrogen supply passage 25 and the anode effluent recirculation passage 8 with the result that the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is reduced.

[0057] Further, the controller 10 reduce the fuel supply amount from the fuel tank 5 to the steam reformer 4 via the vaporizer 3 so as to avoid increasing in the hydrogen permeating amount of the membrane hydrogen separator 11. Thus in this embodiment, the combusted gas from the combustor 1 functions as a sweep gas. Instead of the combustion gas supply passage 21 and the valve 31, it is possible to supply a part of the pressurized air to the hydrogen supply passage 25 using the intake valve 30 and the compressor 7 in the same manner as the first embodiment.

[0058] This embodiment differs from the first and second embodiments in that gas for reducing the hydrogen partial

pressure on the post-separation side 11B is introduced into the combusted gas supply passage 21 and not into the anode effluent recirculation passage 8. This has the following advantage.

[0059] That is to say, a membrane hydrogen separator 11 undergoes embrittlement in a low temperature range below a predetermined temperature. Thus the possibility exists that such embrittlement will be promoted by introducing low temperature gas into the anode effluent recirculation passage 8. Furthermore when gas is introduced into the hydrogen supply passage 25, the temperature of the gas is increased by the heat of reaction in the fuel cell as it passes through the fuel cell stack 2. In this embodiment, this has the desirable effect of preventing embrittlement in the membrane hydrogen separator 11 in comparison to the first and second embodiments.

[0060] Next, a fourth embodiment of this invention will be described with reference to Fig. 4.

[0061] According to this embodiment, instead of the intake valve 30 of the first embodiment, a valve 32 is provided which supplies a part of the cathode effluent discharged from the cathode chamber 2A of the fuel cell stack 2 to the anode effluent recirculation passage 8 through the passage 22. The valve 32 is operated by the controller 10.

[0062] When the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 rises, the controller 10 opens the valve 32 and supplies a part of the cathode effluent to the anode effluent recirculation passage 8. As a result, the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is reduced.

[0063] In the first embodiment, when the intake valve 30 is opened and air is introduced into the anode effluent recirculation passage 8 from the compressor 7, there is the possibility that the air amount supplied to the cathode chamber 2B of the fuel cell stack 2 will undergo fluctuations. In this embodiment, since the oxygen concentration of the sweep gas is regulated using cathode effluent of the cathode chamber 2B, it is possible to prevent fluctuation in the air amount supplied to the cathode chamber 2B by regulating the oxygen concentration in the sweep gas. Furthermore it is possible to promote further reductions in the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 with the steam in the cathode effluent.

[0064] A fifth embodiment of this invention will be described below with reference to Fig. 5.

[0065] This embodiment is related to control of the hydrogen pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 by the controller 10. The hardware composition of this embodiment is identical to that of the first embodiment.

[0066] First, an algorithm for detecting the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B will be described. [0067] Components other than oxygen in air are nitrogen (N<sub>2</sub>), carbon monoxide (CO) and carbon dioxide (CO<sub>2</sub>). The ratio of these components is defined by the following equation. [0068]

$$N_2 : CO : CO_2 = X : Y : Z$$

[0069] These components on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 are recirculated through the anode effluent recirculation passage 8 and the hydrogen supply passage 25 and do not increase as long as the intake valve 30 and the discharge valve 60 are closed.

[0070] When the concentration of nitrogen (N2) in the gas in the passages 8 and 25 is taken to be A(%), the concentration of each component is expressed by the following equation.
[0071]

$$N_2: CO: CO_2 = A: \frac{A \cdot Y}{X}: \frac{A \cdot Z}{X}$$

[0072] The water separator 14 maintains steam on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 at a saturated steam pressure Ps. When the steam concentration on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is taken to be B(%) and the absolute pressure P2a on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is taken to be P2a, the steam concentration B(%) is expressed by the following equation.

$$B = \frac{Ps}{P2a} \cdot 100$$

[0073]

25

30

35

[0074] Thus the hydrogen partial pressure *P2h* on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is expressed by the following equation.
[0075]

 $P2h = P2a \cdot \text{hydrogen concentration}$   $= P2a \cdot \left\{ 1 - \frac{\left(A + \frac{A \cdot Y}{X} + \frac{A \cdot Z}{X} + B\right)}{100} \right\}$ 

5

10

15

25

30

35

40

45

50

[0076] When the hydrogen concentration and the absolute pressure *P2a* on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 are known, it is possible to calculate the hydrogen partial pressure *P2h* from the above equation The concentration of hydrogen is detected by the hydrogen sensor 40 and the absolute pressure *P2a* is detected by the pressure sensor 44.

[0077] The ratio of N2, CO and CO<sub>2</sub> in air is fixed and may be regarded as a constant. Since steam in the anode effluent recirculation passage 8 may be considered to be saturated due to the action of the steam separator 14, the steam concentration B may also be regarded as a constant.

[0078] Thus instead of detecting the hydrogen concentration in the anode effluent recirculation passage 8 with a hydrogen sensor 40, it is possible to calculate the hydrogen partial pressure *P2h* on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 by detecting the concentration A of nitrogen (N<sub>2</sub>) by providing a nitrogen sensor (40A) in the anode effluent recirculation passage 8. Since only a slight concentration of carbon monoxide (CO) and carbon

dioxide (CO<sub>2</sub>) exists in air, the calculation may be simplified by omitting the concentration  $\left(\frac{A \cdot Y}{X} + \frac{A \cdot Z}{X}\right)$  of CO and CO<sub>2</sub> from the above equation.

[0079] Furthermore instead of providing a nitrogen sensor (40A), it is possible to calculate the hydrogen partial pressure *P2h* on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 by providing a carbon monoxide sensor

(40B) in the anode effluent recirculation passage 8 in order to detect the concentration  $\frac{A \cdot Y}{X}$  of carbon monoxide (CO).

[0080] Again instead of providing a nitrogen sensor (40A), it is possible to calculate the hydrogen partial pressure *P2h* on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 by providing a carbon dioxide sensor (40C)

in the anode effluent recirculation passage 8 in order to detect the concentration  $\frac{A \cdot Z}{X}$  of carbon dioxide (CO<sub>2</sub>).

[0081] A control routine for the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 which is executed by the controller 10 using the above algorithm will be described below. This routine is executed at intervals of ten milliseconds.

[0082] In a step S11 shown in Fig. 5, a load on the fuel cell stack 2 is detected by the controller 10. The load can be detected for example from the signals from a controller which controls a load circuit such as a motor.

[0083] Next in a step S12, a target hydrogen partial pressure is calculated in response to the load. The target hydrogen partial pressure is set to a value of a certain width for the convenience of control.

[0084] Basic concepts concerning the relationship of the target hydrogen partial pressure and the load on the fuel cell stack 2 are described below.

[0085] In this fuel cell power plant, the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is reduced by introducing air into the anode effluent recirculation passage 8 from the intake valve 30. A part of the gas in the anode effluent recirculation passage 8 is discharged from the discharge valve 60. As a result, the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 can be increased. Thus the operation of reducing the hydrogen partial pressure results in increases in the gas flow amount of the anode effluent recirculation passage 8. Conversely the operation of increasing the hydrogen partial pressure results in reductions in the gas flow amount of the anode effluent recirculation passage 8.

[0086] An optimal hydrogen pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is taken to be a set pressure with respect to the designed load of the fuel cell stack 2. When the load on the fuel cell stack 2 is equal to the designed load, a target value for the hydrogen pressure on the post-separation side 11B of the membrane

hydrogen separator 11 is set to be equal to the set pressure. In this case, the membrane hydrogen separator 11 separates hydrogen at an optimal efficiency.

[0087] In a low load region wherein the load on the fuel cell stack 2 is less than the designed load, it is possible to maintain a required hydrogen amount even when the amount of hydrogen permeating the membrane hydrogen separator 11 is low. In order to maintain energy consumption of the recirculation pump 9 to low levels, it is necessary to reduce the flow amount of gas in the anode effluent recirculation passage 8.

[0088] Thus when the load on the fuel cell stack 2 is less than the designed load, a target value for the hydrogen pressure is set to be much larger than the set pressure as the load decreases. In this case, the hydrogen permeation amount in the membrane hydrogen separator 11 is low and the gas flow amount in the anode effluent recirculation passage 8 is also low.

[0089] In a high load region wherein the load on the fuel cell stack 2 is greater than the designed load, it is necessary to increase the hydrogen permeation amount through the membrane hydrogen separator 11. However there is an upper limit on the gas flow amount in the anode effluent recirculation passage 8 as a result of the capacity of the recirculation pump 9. If air is introduced into the anode effluent recirculation passage 8 from the intake valve 30 so as to reduce the hydrogen pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11, the total gas flow amount may exceed the upper limit in the anode effluent recirculation passage 8.

[0090] The flow amount of gas in the anode effluent recirculation passage 8 is therefore adapted not to exceed the upper limit by setting the target value for the hydrogen pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 to be larger than the set pressure.

[0091] As a result, the rate of hydrogen permeation of the membrane hydrogen separator 11 is reduced than when the hydrogen pressure is equal to the set pressure. To satisfy the requirement on the hydrogen permeation amount of the membrane hydrogen separator 11, the hydrogen pressure on the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 is increased. The pressure on the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 is increased by increasing the amount of reformate gas produced in the reformer 4 by increasing the fuel supply amount from the fuel tank 5 to the vaporizer 3.

[0092] The target value for the hydrogen partial pressure when the load on the fuel cell stack 2 is greater than the designed load is set as follows.

[0093] The amount of hydrogen required by the fuel cell stack 2 is calculated based on the load, and a target flow amount in the anode effluent recirculation passage 8 is determined in consideration of the maximum flow amount of the recirculation pump 9. A target value for the hydrogen partial pressure is determined from the target flow amount in the anode effluent recirculation passage 8 and the required amount of hydrogen.

[0094] As can be understood from the above explanation, the target hydrogen partial pressure is set to be larger than the set pressure not only when the load on the fuel cell stack 2 is smaller than the designed load, but also when it is larger than the designed load. It is set to be equal to the set pressure only when the load on the fuel cell stack 2 is equal to the designed load.

[0095] Next in a step S13, the actual hydrogen partial pressure *P2h* on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is calculated from the concentration of hydrogen detected by the hydrogen sensor 40.

[0096] In a next step S14, it is determined whether or not the actual hydrogen partial pressure is equal to the target value for hydrogen partial pressure. When the actual partial pressure of hydrogen is equal to the target value, both the intake valve 30 and the discharge valve 60 are closed in a step S18 and the routine proceeds to a step S19.

[0097] In the step S19, it is determined whether or not a consumed amount of hydrogen is greater than the hydrogen permeation amount Q through the membrane hydrogen separator 11. The consumed amount of hydrogen is calculated from the load on the fuel cell stack 2. When the fuel cell stack 2 is used for driving a synchronous electric motor, it is possible to detect the load from a signal in a control circuit of an inverter of the synchronous electric motor. The amount of consumed hydrogen increases as the load increases.

[0098] The amount of hydrogen permeation Q is proportional to the difference of the square root of the hydrogen partial pressure on the pre-separation side 11A and the square root of the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11. The hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B is calculated from the hydrogen concentration detected by the hydrogen sensor 40 as described hereinbefore.

[0099] The hydrogen partial pressure on the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 is calculated as follows.

[0100] When the steam reformer 4 reforms methanol, hydrogen  $(H_2)$ , carbon dioxide  $(CO_2)$ , carbon monoxide (CO), and water  $(H_2O)$  are contained in the reformate gas. When the steam reformer 4 is operated in a fixed state, the ratio of these components is fixed. Thus it is possible to regard them as a constant in order to predict the hydrogen concentration in the reformate gas. The absolute pressure P1a on the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 is detected by the pressure sensor 45. The hydrogen partial pressure Plhon the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 is calculated from the following equation using these values.

[0101]

## $P1h = P1a \cdot \text{hydrogen concentration}$

[0102] Naturally, it is possible to detect the concentration of hydrogen on the pre-separation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 with a hydrogen sensor instead of regarding it as a constant.

[0103] On the other hand, the permeation amount of hydrogen Q0 under predetermined conditions on the membrane hydrogen separator 11 is calculated experimentally. The hydrogen partial pressure on the pre-separation side 11A at this time is taken to be P1h0 and the hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B is taken to be P2h0. This data is used in the following equation to calculate the permeation amount of hydrogen Q.

[0104]

15

20

35

$$Q = Q0 \cdot \frac{\sqrt{P1h} - \sqrt{P2h}}{\sqrt{P1h0} - \sqrt{P2h0}}$$

[0105] When the amount of consumed hydrogen in the step S19 is not greater than the hydrogen permeation amount, it is understood that the hydrogen supply is sufficient. In this case, the routine is immediately terminated.

[0106] On the other hand, when the amount of consumed hydrogen is greater than the hydrogen permeation amount, it is understood that the hydrogen supply is insufficient. In this case, the hydrogen partial pressure *P1h* on the preseparation side 11A of the membrane hydrogen separator 11 in the step S20 is increased in order to increase the hydrogen permeation amount. As shown above, this is performed by increasing the fuel supply amount from the fuel tank 5 to the vaporizer 3. After the controller 10 performs the step S20, the routine is terminated.

[0107] In the step S14, when the actual hydrogen partial pressure on the post-separation side 11B of the membrane hydrogen separator 11 is not equal to the target hydrogen partial pressure, in a step S15, the controller 10 determines whether or not the actual hydrogen partial pressure is greater than the target hydrogen partial pressure. When the actual hydrogen partial pressure is greater than the target hydrogen partial pressure, in a step S16, the intake valve 30 is opened and the discharge valve 60 is closed. After performing this operation, the routine is terminated.

[0108] When the actual hydrogen partial pressure is not greater than the target hydrogen partial pressure, in a step S17,the intake valve 30 is closed and the discharge valve 60 is opened. After performing this operation, the routine is terminated.

[0109] When the air is introduced into the anode effluent recirculation passage 8 by opening the intake valve 30, it is not possible to accurately calculate the hydrogen partial pressure until the oxygen in the air is consumed by oxidation reactions in the fuel cell stack 2. Heat of oxidation is generated when oxygen in the air introduced into the anode effluent recirculation passage 8 undergoes oxidation reactions in the anode chamber 2A. The opening of the intake valve 30 must be controlled so that oxygen introduced into the anode effluent recirculation passage 8 is completely consumed in the fuel cell stack 2 and the heat resulting from the oxidation processes does not exceed the heat tolerance of the fuel cell stack 2.

[0110] During control of the intake valve 30, it is preferred that the introduced amount of air during a single execution of the routine is a fixed amount. Oxygen in the air should be consumed by oxidation reactions and steam generated by these oxidation reactions should be removed by the water separator 14 before a subsequent occasion the routine is executed. The steam concentration in the gas in the anode effluent recirculation passage 8 should also be maintained at the saturation level. The fixed amount is preferably determined to satisfy the above conditions.

[0111] The contents of Tokugan 2000-275190, with a filing date of September 11, 2000 in Japan, are hereby incorporated by reference.

## 50 Claims

55

1. A fuel cell power plant comprising:

a fuel cell stack (2) comprising an anode chamber (2A) and a cathode chamber (2B), the fuel cell stack (2) generating power by a reaction of hydrogen supplied to the anode chamber (2A) and air supplied to the cathode chamber (2B);

a membrane hydrogen separator (11) having a pre-separation side facing a reformate gas and a post-separation side (11B), the membrane hydrogen separator allows hydrogen in the reformate gas to permeate from the pre-

separation side to the post-separation side;

a hydrogen supply passage (25) which supplies hydrogen at the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11) to the anode chamber (2A);

an anode effluent recirculation passage (B) which recirculates anode effluent discharged from the anode chamber (2A) to the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11);

an intake valve (30, 31, 32) which introduces a gas other than hydrogen to one of the anode effluent recirculation passage (8) and the hydrogen supply passage (25); and

a discharge valve (60) which discharges gas from the anode effluent recirculation passage (8).

- 2. The fuel cell power plant as defined in Claim 1, wherein the intake valve (30, 31, 32) comprises a valve (30) which introduces part of the air supplied to the cathode chamber (2B) to the anode effluent recirculation passage (8).
  - 3. The fuel cell power plant as defined in Claim 1 wherein the fuel cell power plant further comprises a combustor (1) which combusts the reformate gas, and the intake valve (30, 31, 32) comprises a valve (31) which introduces combusted gas from the combustor (1) into the hydrogen supply passage (25).
  - 4. The fuel cell power plant as defined in Claim 1, wherein the intake valve (30, 31, 32) comprises a valve (32) which introduces part of a cathode effluent discharged from the cathode chamber (2B) to the anode effluent recirculation passage (8).
  - 5. The fuel cell power plant as defined in any one of Claim 1 through Claim 4, wherein the fuel cell power plant further comprises a sensor (40) which detects a hydrogen partial pressure on the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11), and a controller (10) functioning to open the intake valve (30, 31, 32) while closing the discharge valve (60) when the hydrogen partial pressure is higher than a predetermined pressure, and open the discharge valve (60) while closing the intake valve (30, 31, 32) when the hydrogen partial pressure is lower than the predetermined pressure.
  - 6. The fuel cell power plant as defined in Claim 5, wherein the fuel cell power plant further comprises a sensor (40) which detects a hydrogen concentration on the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11) and a sensor (44) which detects an absolute pressure on the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11), and the controller (10) is further functioning to calculate the hydrogen partial pressure on the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11) by multiplying the hydrogen concentration by the absolute pressure (S12).
- 7. The fuel cell power plant as defined in Claim 2, wherein the fuel cell power plant further comprises a sensor (44) which detects an absolute pressure on the post-separation side (118) of the membrane hydrogen separator (11) and a sensor which detects a gas concentration of any of nitrogen, carbon monoxide and carbon dioxide in the anode effluent recirculation passage (8), and a controller (10) functioning to calculate a hydrogen partial pressure on the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11) based on the gas concentration, a composition of air, and the absolute pressure, open the intake valve (30, 31, 32) while closing the discharge valve (60) when the hydrogen partial pressure is higher than a predetermined pressure region, and open the discharge valve (60) while closing the intake valve (30, 31, 32) when the hydrogen partial pressure is lower than the predetermined pressure region.
- 8. The fuel cell power plant as defined in Claim 7, wherein the fuel cell power plant further comprises a mechanism (3, 4, 5) which supplies the reformate gas to the pre-separation side (11A) of the membrane hydrogen separator (11) and a sensor (45) which detects a hydrogen partial pressure on the pre-separation side (11A) of the membrane hydrogen separator (11), and the controller (10) is further functioning to close the discharge valve (60) and the intake valve (30, 31, 32) when the hydrogen partial pressure on the post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11) is in the predetermined pressure region (S18), calculates a hydrogen permeation amount through the membrane hydrogen separator (11) from the hydrogen partial pressure on the post-separation side (11B) and the hydrogen partial pressure on the pre-separation side (11A), and control the reformate gas supply mechanism (3, 4, 5) to increase the reformate gas when the hydrogen permeation amount is smaller than a predetermined amount (S19, S20).

55

5

15

20

25

#### Patentansprüche

20

25

40

45

50

55

Brennstoffzellen-Aggregat, das umfasst:

- einen Brennstoffzellenstapel (2), der eine Anodenkammer (2A) und eine Kathodenkammer (2B) umfasst, wobei 5 der Brennstoffzellenstapel (2) Energie durch eine Reaktion von Wasserstoff, der der Anodenkammer (2A) zugeführt wird, und Luft, die der Kathodenkammer (2B) zugeführt wird, erzeugt; einen Membran-Wasserstoffabscheider (11), der eine Vor-Abscheidungsseite, die einen Reformatgas zugewandt ist, und eine Nach-Abscheidungsseite (11B) hat, wobei der Membran-Wasserstoffabscheider Wasserstoff in dem Reformatgas von der Vor-Abscheidungsseite zu der Nach-Abscheidungsseite durchlässt; 10 einen Wasserstoff-Zuführkanal (25), der Wasserstoff an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) der Anodenkammer (2A) zuführt; einen Anodenabgas-Rückführkanal (8), der aus der Anodenkammer (2A) abgelassenes Anodenabgas zu der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) zurückführt; ein Einlassventil (30, 31, 32), das ein anderes Gas als Wasserstoff in den Anodenabgas-Rückführkanal (8) 15 oder den Wasserstoff-Zuführkanal (25) einleitet; und ein Ablassventil (60), das Gas aus dem Anodenabgas-Rückführkanal (8) ablässt.
  - Brennstoffzellen-Aggregat nach Anspruch 1, wobei das Einlassventil (30, 31, 32) ein Ventil (30) umfasst, das einen Teil der der Kathodenkammer (2B) zugeführten Luft in den Anodenabgas-Rückführkanal (8) einleitet.
    - Brennstoffzellen-Aggregat nach Anspruch 1, wobei das Brennstoffzellen-Aggregat des Weiteren eine Brennkammer
       umfasst, die das Reformatgas verbrennt, und das Einlassventil (30, 31, 32) ein Ventil umfasst, das verbranntes
       Gas aus der Brennkammer (1) in den Wasserstoff-Zuführkanal (25) einleitet.
    - Brennstoffzellen-Aggregat nach Anspruch 1, wobei das Einlassventil (30, 31, 32) ein Ventil (32) umfasst, das einen Teil eines aus der Kathodenkammer (2B) abgelassenen Kathodenabgases in den Anodenabgas-Rückführkanal (8) einleitet.
- 5. Brennstoffzellen-Aggregat nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei das Brennstoffzellen-Aggregat des Weiteren einen Sensor (40), der einen Wasserstoff-Teildruck an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) erfasst, sowie eine Steuereinheit (10) umfasst, die das Einlassventil (30, 31, 32) öffnet, während sie das Ablassventil (60) schließt, wenn der Wasserstoff-Teildruck höher ist als ein vorgegebener Druck, und das Ablassventil (60) öffnet und dabei das Einlassventil (30, 31, 32) schließt, wenn der Wasserstoff-Teildruck unter dem vorgegebenen Druck liegt.
  - 6. Brennstoffzellen-Aggregat nach Anspruch 5, wobei das Brennstoffzellen-Aggregat des Weiteren einen Sensor (40), der eine Wasserstoffkonzentration an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11A) erfasst, und einen Sensor (44) umfasst, der einen Absolutdruck an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) erfasst, und eine weitere Funktion der Steuereinheit (10) darin besteht, den Wasserstoff-Teildruck an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) zu berechnen, indem sie die Wasserstoffkonzentration mit dem Absolutdruck multipliziert (S12).
  - 7. Brennstoffzellen-Aggregat nach Anspruch 2, wobei das Brennstoffzellen-Aggregat des Weiteren einen Sensor (44), der einen Absolutdruck an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) erfasst, und einen Sensor umfasst, der eine Gaskonzentration von Stickstoff, Kohlenmonoxid oder Kohlendioxid in dem Anodenabgas-Rückführkanal (8) erfasst, und die Funktion einer Steuereinheit (10) dahin besteht, ein Wasserstoff-Teildruck an der Nach-Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) auf Basis der Gaskonzentration, einer Zusammensetzung von Luft und dem Absolutdruck zu berechnen, das Einlassventil (30, 31, 32) zu öffnen und dabei gleichzeitig das Ablassventil (60) zu schließen, wenn der Wasserstoff-Teildruck über einem vorgegebenen Druckbereich liegt, und das Ablassventil (60) zu öffnen und dabei das Einlassventil (30, 31, 32) zu schließen, wenn der Wasserstoff-Teildruck unter dem vorgegebenem Druckbereich liegt.
  - 8. Brennstoffzellen-Aggregat nach Anspruch 7, wobei das Brennstoffzellen-Aggregat des Weiteren einen Mechanismus (3, 4, 5), der der Vor-Abscheidungsseite (11A) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) das Reformatgas zuführt, und einen Sensor (45) umfasst, der einen Wasserstoff-Telldruck an der Vor-Abscheidungsseite (11A) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) erfasst, und eine Funktion der Steuereinheit (10) des Weiteren darin besteht, das Ablassventil (60) und das Einlassventil (30, 31, 32) zu schließen, wenn der Wasserstoff-Teildruck an der Nach-

Abscheidungsseite (11B) des Membran-Wasserstoffabscheiders (11) in dem vorgegebenen Druckbereich liegt, eine Wasserstoff-Durchlassmenge durch den Membran-Wasserstoffabscheider (11) aus dem Wasserstoff-Teildruck an der Nach-Abscheidungsseite (11B) und dem Wasserstoff-Teildruck an der Vor-Abscheidungsseite (11A) zu berechnen und den Reformatgas-Zuführmechanismus (3, 4, 5) so zu steuern, dass er das Reformatgas vermehrt, wenn die Wasserstoff-Permeationsmenge kleiner ist als eine vorgegebene Menge (S19, S20).

#### Revendications

Unité de production d'énergie à pile à combustible comprenant :

un empilage de piles à combustible (2) comprenant une chambre d'anode (2A) et une chambre de cathode (2B), l'empilage de piles à combustible (2) générant de l'énergie grâce à une réaction de l'hydrogène fourni à la chambre d'anode (2A) et de l'air fourni à la chambre de cathode (2B); un séparateur d'hydrogène à membrane (11) ayant un côté de pré-séparation orienté vers un gaz de reformage et un côté de post-séparation (11B), le séparateur d'hydrogène à membrane permettant à l'hydrogène dans le gaz de reformage de s'infiltrer du côté de pré-séparation vers le côté de post-séparation; un passage d'alimentation en hydrogène (25) qui fournit de l'hydrogène au niveau du côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) à la chambre d'anode (2A); un passage de recirculation d'effluent d'anode (8) qui réachemine l'effluent d'anode évacué de la chambre d'anode (2A) vers le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11); une soupape d'admission (30, 31, 32) qui introduit un gaz autre que de l'hydrogène vers l'un du passage de recirculation d'effluent d'anode (8) et du passage d'alimentation en hydrogène (25); et une soupape d'évacuation (60) qui évacue le gaz du passage de recirculation d'effluent d'anode (8).

25

40

45

50

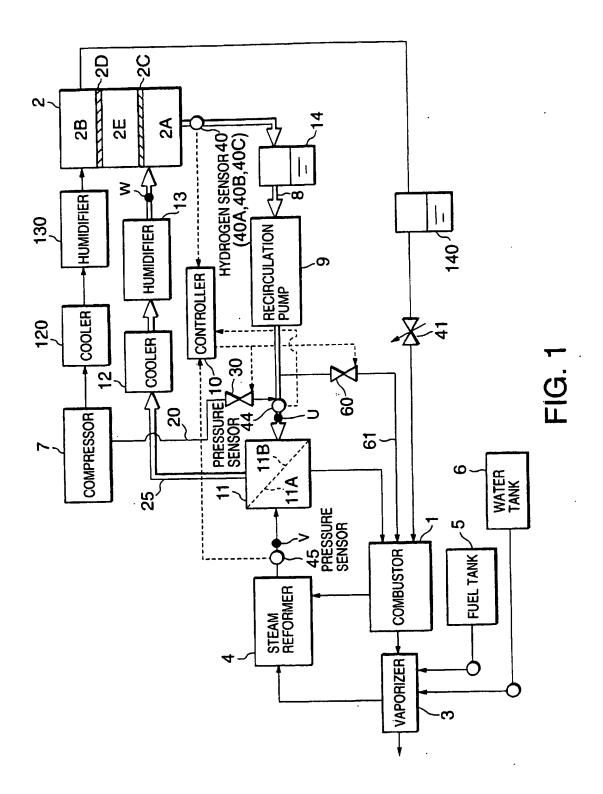
5

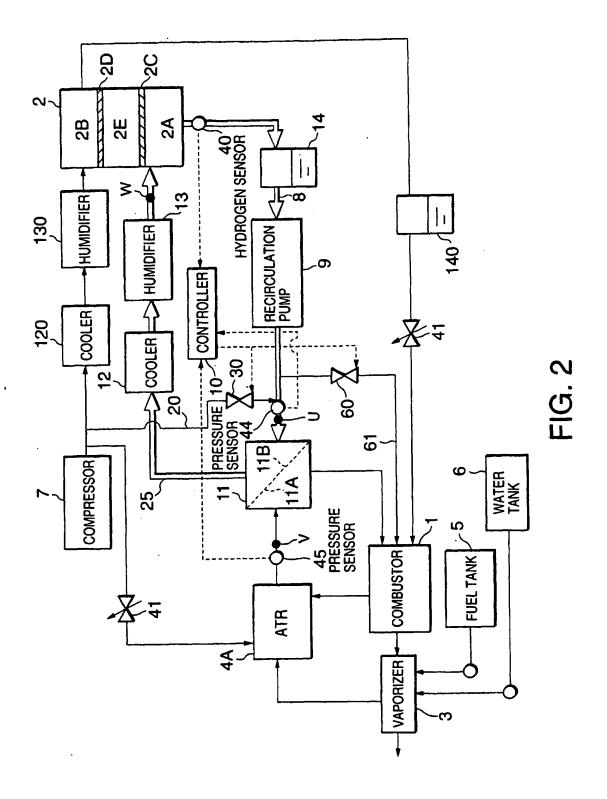
15

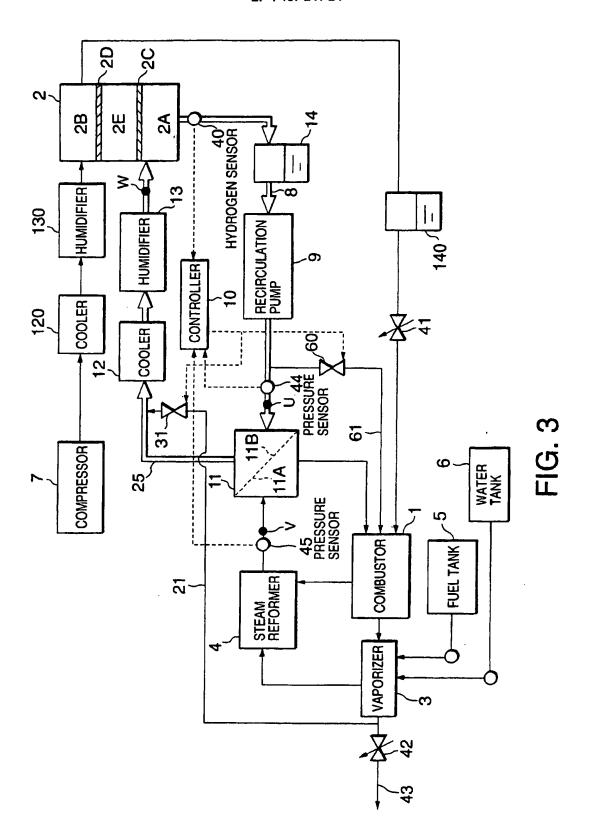
- 2. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon la revendication 1, dans laquelle la soupape d'admission (30, 31, 32) comprend une soupape (30) qui introduit une partie de l'air fourni à la chambre de cathode (2B) dans un passage de recirculation d'effluent d'anode (8).
- 30. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon la revendication 1, dans laquelle l'unité de production d'énergie à pile à combustible comprend en outre une chambre de combustion (1) qui brûle le gaz de reformage, et la soupape d'admission (30, 31, 32) comprend une soupape (31) qui introduit le gaz brûlé provenant de la chambre de combustion (1) dans le passage d'alimentation en hydrogène (25).
- 4. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon la revendication 1, dans laquelle la soupape d'admission (30, 31, 32) comprend une soupape (32) qui introduit une partie d'un effluent de cathode évacué de la chambre de cathode (2B) dans le passage de recirculation d'effluent d'anode (8).
  - 5. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon l'une quelconque de la revendication 1 à la revendication 4, dans laquelle l'unité de production d'énergie à pile à combustible comprend en outre un capteur (40) qui détecte une pression d'hydrogène partielle sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11), et un contrôleur (10) servant à ouvrir la soupape d'admission (30, 31, 32) tout en fermant la soupape d'évacuation (60) quand la pression partielle d'hydrogène est supérieure à une pression prédéterminée, et de manière à ouvrir la soupape d'évacuation (60) tout en fermant la soupape d'admission (30, 31, 32) lorsque la pression partielle d'hydrogène est inférieure à la pression prédéterminée.
    - 6. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon la revendication 5, dans laquelle l'unité de production d'énergie à pile à combustible comprend en outre un capteur (40) qui détecte une concentration d'hydrogène sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) et un capteur (44) qui détecte une pression absolue sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11), et le contrôleur (10) sert en outre à calculer la pression partielle d'hydrogène sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) en multipliant la concentration d'hydrogène par la pression absolue (S12).
- 7. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon la revendication 2, dans laquelle l'unité de production d'énergie à pile à combustible comprend en outre un capteur (44) qui détecte une pression absolue sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) et un capteur qui détecte une concentration gazeuse d'un gaz quelconque parmi l'azote, le monoxyde de carbone et le dioxyde de carbone dans le passage de recirculation d'effluent d'anode (8), et un contrôleur (10) servant à calculer une pression partielle d'hydrogène

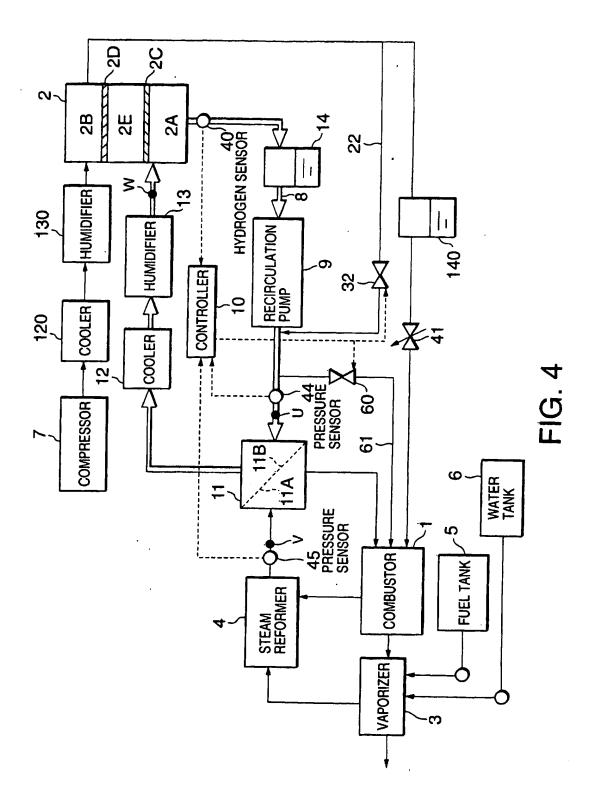
sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) en se basant sur la concentration de gaz, une composition d'air, et la pression absolue, ouvrent la soupape d'admission (30, 31, 32) tout en fermant la soupape d'évacuation (60) lorsque la pression partielle d'hydrogène est supérieure à une région de pression prédéterminée, et ouvrent la soupape d'évacuation (60) tout en fermant la soupape d'admission (30, 31, 32) lorsque la pression partielle d'hydrogène est inférieure à la région de pression prédéterminée.

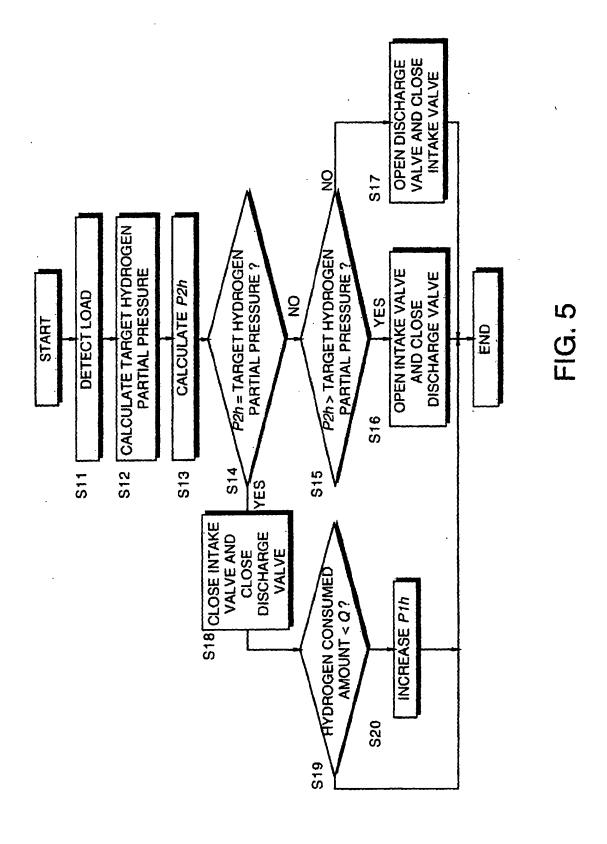
8. Unité de production d'énergie à pile à combustible selon la revendication 7, dans laquelle l'unité de production d'énergie à pile à combustible comprend en outre un mécanisme (3, 4, 5) qui fournit le gaz de reformage au côté de pré-séparation (11A) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) et un capteur (45) qui détecte une pression partielle d'hydrogène sur le côté de pré-séparation (11A) du séparateur d'hydrogène à membrane (11), et le contrôleur (10) sert en outre à fermer la soupape d'évacuation (60) et la soupape d'admission (30, 31, 32) lorsque la pression partielle d'hydrogène sur le côté de post-séparation (11B) du séparateur d'hydrogène à membrane (11) est dans une région de pression prédéterminée (S1B), à calculer une quantité d'infiltration d'hydrogène à travers le séparateur d'hydrogène à membrane (11) à partir de la pression partielle d'hydrogène sur le côté de post-séparation (11B) et la pression partielle d'hydrogène sur le côté de pré-séparation (11A), à contrôler le mécanisme d'alimentation en gaz de reformage (3, 4, 5) pour accroître le gaz de reformage lorsque la quantité d'infiltration d'hydrogène est inférieure à une quantité prédéterminée (S19, S20).











## REFERENCES CITED IN THE DESCRIPTION

This list of references cited by the applicant is for the reader's convenience only. It does not form part of the European patent document. Even though great care has been taken in compiling the references, errors or omissions cannot be excluded and the EPO disclaims all liability in this regard.

## Patent documents cited in the description

- JP 5129029 A [0002]
- JP 7302609 A [0002]

• JP 11116202 A [0007]

#### Fuel cell power plant

Publication number: EP1187241

Publication date:

IIO MASATOSHI (JP); IWASAKI YASUKAZU (JP) Inventor:

NISSAN MOTOR (JP) Applicant:

Classification:

C01B3/38; C01B3/50; C01B3/56; H01M8/04; H01M8/06; C01B3/00; H01M8/04; H01M8/06; (IPC1-7): H01M8/04; H01M8/06 - international:

- European:

Application number: EP20010121025 20010831 Priority number(s): JP20000275190 20000911

C01B3/50B; H01M8/04C2B; H01M8/04C2E2; H01M8/06B2B

Cited documents:

Also published as:

US6841280 (B2)

EP1187241 (A3)

EP1187241 (B1)

US2003027024 (A1)

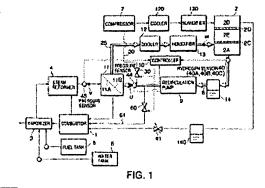
JP2002093436 (A)

JP11116202 JP5129029 JP7302609

Report a data error here

#### Abstract of EP1187241

The hydrogen permeating to a post-separation side (11B) of the membrane hydrogen separator (11) is supplied to an anode chamber (2A) of a fuel cell stack (2) via a hydrogen supply passage (25). A hydrogen recirculation passage (8) recirculates hydrogen from the anode chamber (2A) to the post-separation side (11B). When the hydrogen partial pressure on the post-separation side (11B) increases, air is introduced into the hydrogen recirculation passage (8) from an intake valve (30). When the hydrogen partial pressure decreases, gas in the hydrogen recirculation passage (8) is discharged from an exhaust valve (60). The rate of hydrogen permeation through the membrane hydrogen separator (11) is thereby maintained to a preferred level.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



## 19 BUNDESREPUBLIK **DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES PATENT- UND MARKENAMT** 

# **® Offenlegungsschrift**

<sub>®</sub> DE 101 16 753 A 1

(5) Int. Cl. 7: H 01 M 8/06

(21) Aktenzeichen: 101 16 753.9 4. 4. 2001 (2) Anmeldetag: 25. 10. 2001 (43) Offenlegungstag:

(30) Unionspriorität:

549397

14.04.2000 US

(1) Anmelder:

Ford Global Technologies, Inc., Dearborn, Mich.,

(74) Vertreter:

Bonsmann & Bonsmann Patentanwälte, 41063 Mönchengladbach

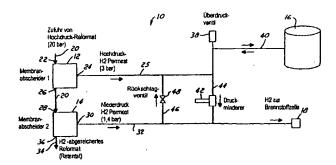
(72) Erfinder:

James, Brian David, Alexandria, Va., US

## Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

- Kraftstoff-Reformersystem für Brennstoffzellen
- Bei einem Bord-Reformersystem für Fahrzeug-Brennstoffzellen sind zwei Wasserstoff-Reinigungseinheiten (12, 14) miteinander verbunden. Die erste Wasserstoff-Reinigungseinheit (12) erzeugt einen ersten Wasserstoffstrom mit einem ersten Druck. Die zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit (14) erzeugt einen zweiten Wasserstoffstrom mit einem zweiten Druck. Der erste Wasserstoffstrom wird einem Metallhydridspeicherbett (16) zugeleitet, um dieses zu beladen. Der Wasserstoff in dem Metallhydridspeicherbett bewirkt in Verbindung mit dem zweiten Wasserstoffstrom die Versorgung einer Brennstoffzelle (18).



1

#### Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft Brennstoffzellen im Allgemeinen und insbesondere ein Kraftstoff-Reformersystem für Brennstoffzellen, bei dem mehrere Membran-Wasserstofftrennvorrichtungen eingesetzt werden.

[0002] Brennstoffzellen wurden in jüngster Zeit als alternative Energiequelle z. B. für Elektroautos entwickelt. Eine Brennstoffzelle ist ein bedarfsgesteuertes Energiesystem, bei dem die Brennstoffzelle in Reaktion auf die Last, der sie 10 unterliegt, arbeitet. Typischerweise dient ein flüssiger, wasserstoffhaltiger Kraftstoff (z. B. Benzin, Methanol, Diesel, Naphtha etc.) als Brennstofflieferant für die Brennstoffzelle, nachdem er in einen wasserstoffhaltigen gasförmigen Strom umgewandelt wurde. Dazu wird der wasserstoffhaltige 15 Kraftstoff durch einen Reformer geleitet, wodurch der flüssige Kraftstoff in ein Wasserstoffgas (10-75%, abhängig von dem flüssigen Kraftstoff) umgewandelt wird, das normalerweise weitere passivierende Gase wie Kohlenmonoxid, Kohlendioxid, Methan, Wasserdampf, Sauerstoff, 20 Stickstoff, nicht verbrannten Kraftstoff und in einigen Fällen Wasserstoffsulfid enthält. Der Wasserstoff dient der Brennstoffzelle dann als Brennstoff.

[0003] Bekannte Einrichtungen zur Reformierung eines Kraftstoffes auf Kohlenwasserstoffbasis in einen gasförmi- 25 gen Reformatstrom weisen eine Membran-Wasserstoffreinigungseinheit auf, die aus einer hoch permselektiven (permselective) Membran besteht, welche bevorzugt Wasserstoffmoleküle passieren lässt. Im Betrieb strömt Reformat unter hohem Druck entlang der einen Seite der Membran, und auf 30 der anderen Seite der Membran wird normalerweise reiner Wasserstoff mit niedrigerem Druck gesammelt (Permeat). Der Unterschied des Wasserstoffpartialdrucks auf beiden Seiten der Membran ist die treibende Kraft für die Trennung des Wasserstoffs. Der Permeat-Wasserstoffdruck sollte den 35 Reformat-Wasserstoffpartialdruck niemals überschreiten. Je höher der Permeatdruck überdies ist, desto größer ist die Menge des Reformat-Wasserstoffs, die den Membranabscheider verlässt, ohne auf die Permeatseite zu wechseln.

[0004] Der reine, gasförmige Wasserstoff wird typischerweise in ein Metallhydridsystem geleitet. Dieses speichert gasförmigen Wasserstoff und dient sowohl als Lastausgleichsvorrichtung als auch als Wasserstoffvorrat, der zum Anlassen des Fahrzeugs (während der Kohlenwasserstoffreformer auf Betriebstemperatur gebracht wird) verwendet 4s wird. Das Metallhydridsystem dient als Lastausgleichsvorrichtung, indem es Wasserstoffgas von dem Reformer/H<sub>2</sub> Membransystem absorbiert (speichert), wenn der Reformerausstoß den Wasserstoffverbrauch der Brennstoffzelle übersteigt, und gespeicherten Wasserstoff desorbiert (abgibt), 50 wenn der Reformerausstoß den Wasserstoffverbrauch der Brennstoffzelle unterschreitet.

[0005] Wasserstoff wird in einer Metallhydridlegierung absorbiert, wenn der Gasdruck den Hydrid-Gleichgewichtsdruck (für eine bestimmte Temperatur) übersteigt, und Wasserstoff wird von dem Metallhydrid desorbiert, wenn der Gasdruck unter dem Hydridgleichgewichtsdruck liegt. Allgemein ist ein hoher Wasserstoffdruck erforderlich, um ein Metallhydridbett zu beladen, und ein niedriger Wasserstoffdruck, um das Bett zu entladen.

[0006] Ein Problem der gegenwärtigen, von einem Reformer gespeisten Brennstoffzellensysteme ist, dass sie relativ groß, schwer und teuer sind. Dies ist teilweise darauf zurückzuführen, dass der Wasserstoff, der den Brennstoffzellen bereitgestellt wird, Verunreinigungen und Verdünner 65 (d. h. andere Gase als Wasserstoff) enthält. Diese Verunreinigungen und Verdünner verursachen eine relativ signifikante Minderung der Energieleistung pro spezifischem Ge-

2

wicht und Volumen der Brennstoffzelle.

[0007] Ein weiteres Problem gegenwärtiger Brennstoffzellensysteme besteht darin, dass sie in der Regel einen Wasserstoffkompressor benötigen, um den Wasserstoff-

- druck auf den notwendigen Metallhydrid-Absorptionsdruck zu erhöhen. Die Integration eines Wasserstoffkompressors erhöht die Kosten und das Gewicht des Systems zusätzlich. [0008] Darüber hinaus haben die derzeitigen Brennstoffzellensysteme mit Bord-Reformierung eine relativ langsame Reaktionszeit beim Anlassen elektrischer Fahrzeuge im Ver-
- Reaktionszeit beim Anlassen elektrischer Fahrzeuge im Vergleich zu herkömmlichen Fahrzeugen.

[0009] Die Erfindung hat daher zur Aufgabe, ein Brennstoffzellen-Energieerzeugungssystem bereitzustellen, das kompakter als bisherige Systeme ist.

[0010] Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, ein Brennstoffzellen-Energieerzeugungssystem mit einer relativ schnellen Reaktionszeit bereitzustellen, so dass ein Metallhydridbett als Lastausgleichsvorrichtung und als Wasserstoffgaslieferant für die Inbetriebnahme des Systems dienen kann.

[0011] Ferner ist es eine Aufgabe der Erfindung, ein Brennstoffzellen-Energieerzeugungssystem mit einer verbesserten Systemeffizienz bereitzustellen.

[0012] Gemäß den oben genannten und weiteren Aufgaben der Erfindung wird ein Bord-Reformersystem für Brennstoffzellen bereitgestellt. Das System beinhaltet eine erste Wasserstoff-Reinigungseinheit mit einem Einlass zur Aufnahme einer Zufuhr von Hochdruck-Reformat und einem Auslass zum Ausstoß von Wasserstoff-Permeat. Die erste Wasserstoff-Reinigungseinheit hat außerdem einen Auslass für den nicht permeierten Anteil des Hochdruck-Reformats. Eine zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit hat einen Einlass, um den nicht permeierten Anteil des Hochdrucks-Reformats vom Auslass der ersten Wasserstoff-Reinigungseinheit aufzunehmen. Ferner verfügt die zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit über einen Auslass zum Ausstoß von Wasserstoff-Permeat.

[0013] Ein Metallhydridspeicherbett hat eine Verbindung zu dem Auslass der ersten Wasserstoff-Reinigungseinheit, um von dort ausgestoßenes Wasserstoff-Permeat aufzunehmen. Das Metallhydridspeicherbett hat ferner eine Verbindung zu der Brennstoffzelle, um Wasserstoff dorthin zu übertragen. Außerdem erhält die Brennstoffzelle ausgestoßenes Wasserstoff-Permeat vom Auslass der zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit.

[0014] Zusätzliche Ziele und Merkmale der Erfindung werden bei Betrachtung der Zeichnung und der nachfolgenden detaillierten Beschreibung einer bevorzugten Ausgestaltung offenbar.

0 [0015] Die einzige Figur zeigt eine schematische Darstellung eines Kraftstoff-Reformersystems für Brennstoffzellen gemäß einer bevorzugten Ausgestaltung der Erfindung.

[0016] Die Erfindung betrifft ein Kraftstoff-Reformersystem für Brennstoffzellen, das auch als BrennstoffzellenEnergieerzeugungssystem bezeichnet wird. Vorzugsweise dient die Brennstoffzelle zum Betrieb eines Elektroautos. Die Brennstoffzelle und die hier offenbarte Erfindung können jedoch für eine Reihe verschiedener Anwendungen sowohl innerhalb als auch außerhalb des Automobilbereichs Verwendung finden.

[0017] Das Kraftstoff-Reformersystem 10 umfasst eine erste Wasserstoff-Reinigungseinheit 12, eine zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit 14, ein Metallhydridspeicherbett 16 und eine Brennstoffzelle 18. Bei der ersten und zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit 12 und 14 handelt es sich vorzugsweise um Membran-Reinigungseinheiten, die aus einer hoch permselektiven Membran bestehen, welche bevorzugt Wasserstoffmoleküle weiterleitet. Es können jedoch

3

verschiedene andere Reinigungseinheiten Verwendung finden.

[0018] Die erste Wasserstoff-Reinigungseinheit 12 nimmt eine Hochdruck-Reformatzufuhr oder einen Strom 20 auf, welche(r) an dem Einlass 22 in die erste Reinigungseinheit 12 eintritt und die erste Reinigungsanlage 12 auf einer Seite einer Membran oder einer ähnlichen Einrichtung zum Reinigen oder Trennen des Wasserstoffs von der Reformatzufuhr 20 in bekannter Weise durchläuft.

[0019] Die Reformatzufuhr 20 besteht vorzugsweise aus 10 einem Strom, der sich aus einer Mischung aus Wasserstoff, Kohlendioxid, Kohlenmonoxid, Wasser und einem Kraftstoff auf Kohlenwasserstoffbasis zusammensetzt, und welcher der ersten Reinigungseinheit 12 vorzugsweise mit einem Druck von beispielsweise ca. 20 bar zugeführt wird. 15 Selbstverständlich kann der Strom jeder beliebige wasserstoffhaltige Gasstrom sein.

[0020] Die erste Wasserstoff-Reinigungseinheit 12 stellt vorzugsweise eine hohe Wasserstoffausbeute aus der Reformatzufuhr 20 bereit, so dass ein Wasserstoffpermeatstrom 20 die Reinigungsanlage 12 an dem Auslass 24 auf der anderen Seite der Membran (oder anderen Einrichtung) als derjenigen, wo der Reformatstrom durch läuft, verlässt. In der bevorzugten Ausgestaltung verlässt der Wasserstoffpermeatstrom die erste Wasserstoff-Reinigungsanlage 12 mit einem 25 Druck von ca. 2,5-3 bar und wird in die Leitung 25 weitergeleitet. Es versteht sich, dass der Reformatstromdruck und der Wasserstoffstromdruck nur exemplarisch sind und je nach System variiert werden können.

[0021] Die Reformatzufuhr 20 verlässt die erste Reini- 30 gungseinheit 12 an dem Auslass 26 und wird dann an dem Einlass 28 der zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit 14 zugeführt. Die Reformatzufuhr 20 tritt an dem Einlass 28 ein und durchläuft die zweite Reinigungseinheit 14 auf einer Seite einer Membran oder ähnlichen Einrichtung zum Reini- 35 gen oder Trennen des Wasserstoffs von der Reformatzufuhr 20. Die zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit 14 stellt vorzugsweise eine hohe Wasserstoffausbeute aus der Reformatzufuhr 20 bereit, so dass ein Wasserstoffpermeatstrom die Reinigungsanlage 14 an dem Auslass 30 auf der anderen 40 Seite der Membran (oder anderen Einrichtung) als derjenigen, wo der Reformatstrom 20 durch läuft, verlässt. In der bevorzugten Ausgestaltung verlässt der Wasserstoffpermeatstrom die zweite Wasserstoff-Reinigungsanlage 14 mit einem Druck von ca. 1-1,5 bar und wird in die Leitung 32 45 weitergeleitet. Der genannte Druck für den Wasserstoffpermeatstrom ist ebenfalls rein exemplarisch und nicht als einschränkend zu verstehen.

[0022] Über den Auslass 36 verlässt wasserstoffabgereichertes Reformat (Retentat) 34 die zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit 14. Das Wasserstoffpermeat aus der ersten Reinigungseinheit 12 wird über die Leitung 25, über das Überdruckventil 38 und dann über die Leitung 40 in das Metallhydridspeicherbett 16 weitergeleitet. Gemäß der bevorzugten Ausgestaltung wird das Wasserstoffpermeat mit einem Druck von ca. 3 bar direkt zu dem Metallhydridbett 16 weitergeleitet, um eine Nachladen desselben zu ermöglichen. Das Überdruckventil 38 ist vorzugsweise so eingestellt, dass es sich öffnet, um den Druck des Permeats zu reduzieren, wenn der Druck des Permeats zu oder von der Leitung 40 einen festgesetzten Grenzwert übersteigt.

[0023] Im Betrieb wird das Wasserstoffpermeat aus der zweiten Reinigungsanlage 14 über die Leitung 32 direkt zu der Brennstoffzelle 18 weitergeleitet. Somit wird aus der zweiten Reinigungseinheit 14 der Brennstoffzelle 18 nach 65 Bedarf Wasserstoffpermeat mit einem Druck von ca. 1,5 bar direkt zugeführt. Die zweite Reinigungseinheit 14 und die Leitung 32 dienen somit als Umgehung des Metallhydrid-

betts.

[0024] Um die Brennstoffzelle 18 mit Wasserstoff aus dem Metallhydridspeicherbett 16 zu versorgen, ist in der Leitung 44 zwischen dem Metallhydridspeicherbett 16 und der Brennstoffzelle 18 ein Druckregler 42 angeordnet. Bis das Wasserstoffpermeat gebraucht wird, wird es mit einem Druck von z. B. 3 bar in dem Metallhydridspeicherbett 16 eingelagert. Um die Brennstoffzelle zu versorgen, wird das Wasserstoffpermeat von dem Metallhydridspeicherbett 16 über den Druckregler 42 geleitet. Vorzugsweise wird der Druck des Wasserstoffs auf den Druck des in der Leitung 32 befindlichen Wasserstoffpermeats reduziert, so dass eine Vermischung stattfinden kann. Der Druckregler 42 hat auch die Funktion, einen Gegendruck für das Metallhydridbett bereitzustellen. Bei der bevorzugten Ausgestaltung schwankt der Druck in dem Metallhydridspeicherbett 16 demgemäß zwischen ca. 1,5 bar und 3 bar je nachdem, ob das Bett beladen oder entladen wird und in Abhängigkeit von der Be- und Entladerate.

[0025] Um ein Kraftstoffreformersystem 10 mit einer relativ kompakten Größe zu erhalten, wird ein Reformatgesamtdruck von 5–20 bar und ein Permeatdruck von weniger als oder gleich 1 bar bevorzugt. Obwohl verschiedene Drücke genannt wurden, sind die tatsächlichen Drücke nicht entscheidend für das Funktionieren der Erfindung. Es ist nur entscheidend, dass während des Wasserstoffverbrauchs der Brennstoffzelle der Druck des Wasserstoffpermeats, das die erste Reinigungseinheit 12 am Auslass 24 verlässt, höher ist als der Druck des Wasserstoffpermeats, das die zweite Reinigungseinheit 14 am Auslass 30 verlässt.

[0026] Über die Nebenleitung 46 besteht vorzugsweise eine Strömungsverbindung zwischen der Leitung 25 und der Leitung 32. Wenn der Wasserstoffverbrauch der Brennstoffzelle gleich Null ist, steigt der Permeatdruck in der Leitung 32 bei der zweiten Reinigungseinheit 14. Wenn der Permeatdruck des Wasserstoffs aus der zweiten Reinigungseinheit 14 höher ist als der Permeatdruck des Wasserstoffs aus der ersten Reinigungseinheit 12, dann strömt das Permeat aus der zweiten Reinigungseinheit 14 über ein Rückschlagventil 48 (check valve), welches in der Nebenleitung 46 angeordnet ist, in das Metallhydridspeicherbett und lädt dieses somit auf. Bei einem Abschalten des Systems, wenn der Brennstoffzellenverbrauch gleich Null ist und sich Wasserstoff in dem Reformatstrom befindet, steigt der Permeatdruck ebenfalls an, und es erfolgt ein Beladen des Metallhydrids.

[0027] Die Einrichtung und das Verfahren der Erfindung ermöglicht es, ein einziges Hydridbett zur gleichzeitigen Speicherung und Abgabe von Wasserstoff an die Brennstoffzelle zu verwenden. Darüber hinaus ermöglicht der Einsatz eines Membranabscheiders mit niedrigem Permeatdruck eine hohe Wasserstoffausbeute aus dem Reformatstrom und bietet somit eine hohe Systemeffizienz. Außerdem stellt die Erfindung ein kompaktes System mit einer schnellen Reaktionszeit bereit, so dass das Metallhydridbett als Lastausgleichsvorrichtung und Wasserstofflieferant für die Inbetriebnahme des Systems dienen kann.

#### Patentansprüche

1. Reformersystem (10) für eine Fahrzeugbrennstoffzelle (18), mit:

ciner ersten Wasserstoff-Reinigungseinheit (12) mit einem Einlass (22) zur Aufnahme von Hochdruck-Reformat (20) und einem Auslass (24) zum Ausstoßen von Wasserstoffpermeat;

einer zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit (14) mit einem Einlass (28) zur Aufnahme von Hochdruck-Reformat (20) und einem Auslass (30) zum Ausstoßen

von Wasserstoffpermeat,

wobei während des Wasserstoffverbrauchs der Brennstoffzelle (18) das Wasserstoffpermeat, das von dem Auslass der zweiten Reinigungseinheit (14) ausgestoßen wird, einen niedrigeren Druck hat als das Wasserstoffpermeat, das von dem Auslass der ersten Reinigungseinheit (12) ausgestoßen wird;

5

einem Metallhydridspeicherbett (16), das eine direkte Verbindung (25, 40) zu dem Auslass (24) der ersten Wasserstoff-Reinigungseinheit (12) hat, um von dort 10 ausgestoßenes Wasserstoffpermeat aufzunehmen,

wobei das Metallhydridspeicherbett eine Verbindung (44) zu der Brennstoffzelle hat, um Wasserstoff dorthin zu leiten, und

- wobei die Brennstoffzelle weiterhin eine Verbindung 15 (32) zu dem Auslass (30) der zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit (14) hat, um von dort ausgestoßenes Wasserstoffpermeat aufzunehmen.
- Reformersystem nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die erste Wasserstoff-Reinigungseinheit 20 (12) einen Membranabscheider enthält.
- 3. Reformersystem nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit (14) einen Membranabscheider enthält.
- 4. Reformersystem nach einem der Ansprüche 1 bis 3, 25 dadurch gekennzeichnet, dass die erste Wasserstoff-Reinigungseinheit (12) in einem Bereich von circa 2, 5 bis 3 bar Permeatdruck arbeitet, was ein Nachladen des Metallhydridbetts (16) ermöglicht.
- 5. Reformersystem nach einem der Ansprüche 1 bis 4, 30 dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Wasserstoff-Reinigungseinheit (14) in einem Bereich von circa 1 bis 1,5 bar Permeatdruck arbeitet, um eine sehr hohe Ausbeute aus dem Hochdruck-Reformat zu erzielen. 6. Reformersystem nach einem der Ansprüche 1 bis 5, 35 dadurch gekennzeichnet, dass der Auslass (30) der zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit (14) über eine Leitung (46) mit dem Auslass (24) der ersten Wasserstoff-Reinigungseinheit (12) verbunden ist, so dass der Wasserstoff aus der zweiten Wasserstoff-Reinigungs- 40 einheit direkt in das Metallhydridspeicherbett (16) weitergeleitet wird, wenn der Druck des Wasserstoffs aus der ersten Wasserstoff-Reinigungseinheit niedriger ist als der Druck des Wasserstoffs aus der zweiten Wasserstoff-Reinigungseinheit.
- 7. Reformersystem nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass in der Leitung (46) ein Rückschlagventil (48) vorgesehen ist, um zu verhindern, dass ein Austausch des vom Auslass (24) der ersten Reinigungseinheit (12) ausgestoßenen Wasserstoffs mit dem vom 50 Auslass (30) der zweiten Reinigungseinheit (14) ausgestoßenen Wasserstoff stattfindet.
- 8. Reformersystem nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass ein Druckminderer (42) vorgesehen ist, der zwischen dem Metallhydridspeicherbett (16) und der Brennstoffzelle (18) angeordnet ist.
- 9. Vorrichtung zum Betreiben einer Brennstoffzelle (18), umfassend:
- eine erste Membran-Wasserstofftrennvorrichtung (12) 60 zum Erzeugen eines ersten Wasserstoffstroms aus einem gasförmigen Reformat (20);
- eine zweite Membran-Wasserstofftrennvorrichtung (14) zum Erzeugen eines zweiten Wasserstoffstroms aus einem gasförmigen Reformat, wobei die zweite 65 Membran-Wasserstofftrennvorrichtung mit der ersten Membran-Wasserstofftrennvorrichtung in Verbindung steht;

ein Metallhydridspeichersystem (16) zur Aufnahme des ersten Wasserstoffstroms aus der ersten Membran-Trennvorrichtung (12), wenn der Druck des ersten Wasserstoffstroms größer ist als der Druck des zweiten Wasserstoffstroms,

wobei die Brennstoffzelle (18) in Strömungsverbindung mit dem zweiten Wasserstoffstrom und dem Metallhydridspeichersystem steht, wenn der Druck des ersten Wasserstoffstroms größer ist als der Druck des zweiten Wasserstoffstroms.

- 10. Vorrichtung nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass ein Druckminderer (42) vorgesehen ist, der den Druck des Wasserstoffs aus dem Metallhydridspeicherbett (16) so weit senkt, dass er ungefähr dem Druck des zweiten Wasserstoffstroms gleich ist.
- 11. Vorrichtung nach Anspruch 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck des ersten Wasserstoffstroms zwischen 2,5 und 3,0 bar liegt.
- 12. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck des zweiten Wasserstoffstroms zwischen 1,0 und 1,5 bar liegt.
- 13. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck des gasförmigen Reformats zwischen 5 und 20 bar liegt.
- 14. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 13, dadurch gekennzeichnet, dass ein Rückschlagventil (48) vorgesehen ist, das es ermöglicht, das Metallhydridspeicherbett (16) mit dem zweiten Wasserstoffstrom zu beladen, wenn der Druck des zweiten Wasserstoffstroms größer ist als der Druck des ersten Wasserstoffstroms.
- 15. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass die Brennstoffzelle (18) in einem Motorfahrzeug Verwendung findet.
- 16. Verfahren zur Versorgung einer Brennstoffzelle (18) mit Wasserstoff, umfassend die folgenden Schritte:

Einleiten eines Hochdruck-Reformats (20) in einen ersten Membranabscheider (12);

Abscheiden eines ersten Wasserstoffpermeats und Ausstoßen dieses ersten Wasserstoffpermeats mit einem Druck, der niedriger ist als der des Hochdruck-Reformets

Einleiten des Hochdruck-Reformats in einen zweiten Membranabscheider (14);

Abscheiden eines zweiten Wasserstoffpermeats und Ausstoßen dieses zweiten Wasserstoffpermeats mit einem Druck, der niedriger ist als der des ersten Wasserstoffpermeats;

Beladen eines Metallhydridspeicherbetts (16) mit einem Wasserstoffpermeat auf einen Druck, der dem Druck des ersten Wasserstoffpermeats ungefähr gleich ist:

Zuleiten des Wasserstoffpermeats zu der Brennstoffzelle.

- 17. Verfahren nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, dass die Brennstoffzelle (18) das zweite Wasserstoffpermeat aufnimmt, wenn der Druck des zweiten Wasserstoffpermeats niedriger ist als der Druck des ersten Wasserstoffpermeats.
- 18. Verfahren nach Anspruch 16 oder 17, dadurch gekennzeichnet, dass der Wasserstoffpermeatdruck bei der Weiterleitung von dem Metallhydridspeicherbett (16) zu der Brennstoffzelle (18) vermindert wird.
- 19. Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 18, dadurch gekennzeichnet, dass das zweite Wasserstoffpermeat in das Metallhydridspeicherbett (16) geleitet wird, wenn der Druck des zweiten Wasserstoffperme-

ats größer ist als der Druck des ersten Wasserstoffper-

meats.

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck des ersten Wasserstoffpermeats gemindert wird, wenn der Druck 5 größer ist als der Druck des zweiten Wasserstoffperme-

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

